

505,342

特許協力条約に基づいて公開された国際出願

20 AUG 2004

(19) 世界知的所有権機関  
国際事務局(43) 国際公開日  
2003 年 8 月 28 日 (28.08.2003)

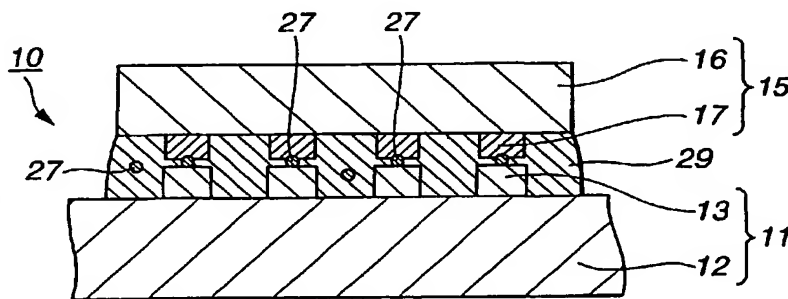
PCT

(10) 国際公開番号  
WO 03/070847 A1

- (51) 国際特許分類: C09J 5/00, H05K 3/36, C09J 201/00, 163/00
- (21) 国際出願番号: PCT/JP03/01591
- (22) 国際出願日: 2003 年 2 月 14 日 (14.02.2003)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ: 特願2002-44232 2002 年 2 月 21 日 (21.02.2002) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): ソニーケミカル株式会社 (SONY CHEMICALS CORPORATION) [JP/JP]; 〒141-0032 東京都品川区大崎 1 丁目 1 番 2 号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者; および
- (73) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 松島 隆行 (MATSUSHIMA, Takayuki) [JP/JP]; 〒322-0014 栃木県鹿沼市さつき町 1 2-3 ソニーケミカル株式会社 第 2 工場内 Tochigi (JP). 斉藤 雅男 (SAITO, Masao) [JP/JP]; 〒322-0014 栃木県鹿沼市さつき町 1 2-3 ソニーケミカル株式会社 第 2 工場内 Tochigi (JP).
- (74) 代理人: 小池 晃, 外 (KOIKE, Akira et al.); 〒100-0011 東京都千代田区内幸町一丁目 1 番 7 号 大和生命ビル 11 階 Tokyo (JP).
- (81) 指定国 (国内): CN, KR, US.
- 添付公開書類:  
— 国際調査報告書
- 2 文字コード及び他の略語については、定期発行される各 PCT ガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

(54) Title: PROCESS FOR PRODUCING ELECTRICAL APPARATUS

(54) 発明の名称: 電気装置の製造方法



(57) Abstract: A process for producing an electrical apparatus by electrically and mechanically bonding two objects to be bonded to each other, which comprises hot-pressing an adhesive layer (25) formed on an LCD (11) against a second hardener layer (28) formed on a TCP (15) while keeping them in close contact with each other, whereby a first hardener contained in the adhesive layer (25) reacts with a second hardener constituting the second hardener layer (28) to polymerize a thermosetting resin contained in the adhesive

layer (25) and thereby bond the LCD (11) to the TCP (15). When a metal chelate or metal alcoholate and a silane coupling agent are used respectively as the first and second hardeners, then cations generate by the reaction of the silane coupling agent with the metal chelate and the thermosetting resin undergoes cationic polymerization due to the cations. Thus, in bonding the LCD (11) to the TCP (15), the adhesive can be cured at a lower temperature in a shorter time than conventional adhesives.

[続葉有]

WO 03/070847 A1



---

(57) 要約:

本発明は、2つの接合対象物を電氣的且つ機械的に接合して電気装置を製造する方法であり、LCD (11) に設けた接着剤層 (25) と、TCP (15) に設けた第2の硬化剤層 (28) とを密着させた状態で加熱押圧すると、接着剤層 (25) 中の第1の硬化剤と第2の硬化剤層 (28) を構成する第2の硬化剤とが反応し、接着剤層中の熱硬化性樹脂が重合し、LCD (11) とTCP (15) を接合して電気装置が製造される。第1及び第2の硬化剤として金属キレート又は金属アルコラートとシランカップリング剤とを用いると、シランカップリング剤と金属キレートとの反応によってカチオンが生じ、カチオンによって熱硬化性樹脂がカチオン重合するので、従来の接着剤を用いた場合に比し低温、短時間で接着剤を硬化させてLCD (11) とTCP (15) との接合が行われる。

## 明細書

## 電気装置の製造方法

## 技術分野

本発明は、それぞれ電極を形成した第１及び第２の接合対象物を接合して製造される電気装置の製造方法に関する。

本出願は、日本国において２００２年２月２１日に出願された日本特許出願番号２００２－０４４２３２を基礎として優先権を主張するものであり、この出願は参照することにより、本出願に援用される。

## 背景技術

従来、半導体チップや基板等の接合対象物を貼り合わせ接合して電気装置を製造するために、熱硬化性樹脂であるエポキシ樹脂を含有し、エポキシ樹脂の熱重合により硬化する熱硬化型の接着剤が用いられている。

エポキシ樹脂の熱重合反応を促進するために、一般に接着剤には硬化剤が用いられている。この種の硬化剤としては、イミダゾール化合物のように、エポキシ樹脂の重合触媒として機能する硬化剤や、メルカプタン化合物やアミン化合物のように硬化剤自体がエポキシ樹脂と付加反応し、重合体を形成する硬化剤が広く用いられている。

イミダゾール化合物を硬化剤として用いた場合は接着剤を短時間で硬化させることが可能であるが、接着剤を１８０℃以上の高温に加熱する必要があり、加熱によって接合対象物に伸びや反り等の変形が生じる場合がある。

アミン化合物やメルカプタン化合物を硬化剤として用いると、接着剤をより低温で硬化させることができるが、接着剤は硬化に要する時間がイミダゾール化合物の場合よりも長くなり、生産性が低下してしまう。低温で硬化する接着剤は、常温でもエポキシ樹脂の重合反応が進行するため、接着剤の保存性が著しく劣る。

低温で、且つ短時間で硬化し、しかも保存性の良好な接着剤を得ることは困難であった。

#### 発明の開示

本発明の目的は、上述したような従来の電気装置の製造法が有する問題点を解消することができる新規な電気装置の製造方法を提供することにある。

本発明の他の目的は、保存性に優れ、低温で、且つ短時間の条件で硬化可能な接着剤を用いて第1及び第2の接合対象物を接合することにより、容易にしかも迅速に電気装置の製造を可能とする製造方法を提供することにある。

上述の目的を達成するために提案される本発明は、第1の電極を有する第1の接合対象物に、第1の電極と接続されるべき第2の電極を有する第2の接合対象物を接合し、第1の接合対象物と第2の接合対象物とがらなる電気装置を製造する電気装置の製造方法であって、少なくとも第1の電極上に、熱硬化性樹脂と第1の硬化剤とを有する接着剤を配置して接着剤層を形成する工程と、少なくとも第2の電極上に、加熱によって第1の硬化剤と反応し、熱硬化性樹脂を重合させる第2の硬化剤を配置して第2の硬化剤層を形成する工程と、第1の電極と第2の電極とを位置合わせする工程と、第1の接合対象物上の接着剤と、第2の接合対象物上の第2の硬化剤とを密着させる工程と、第1、第2の接合対象物を押圧し、第1の電極と第2の電極とを接続すると共に、加熱によって熱硬化性樹脂を重合させる工程とを有する。

本発明に係る電気装置の製造方法は、更に接着剤に予め導電性粒子を添加しておき、第1の電極と第2の電極とを導電性粒子を介して接続するようにする。

本発明に係る電気装置の製造方法に用いられる接着剤に含まれる第1及び第2の硬化剤のうち、一方の硬化剤はシランカップリング剤を主成分とし、他方の硬化剤は金属キレート又は金属アルコラートのいずれか一方又は両方を主成分とする。他方の硬化剤を構成する金属キレートには、アルミニウムキレートが用いられる。また、金属アルコレートには、アルミニウムアルコレートが用いられる。

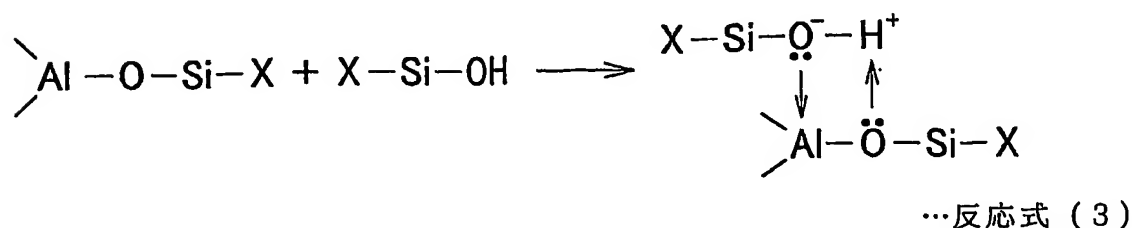
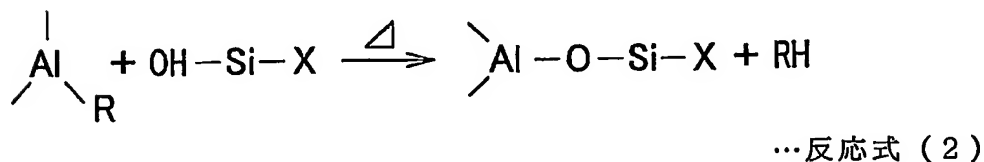
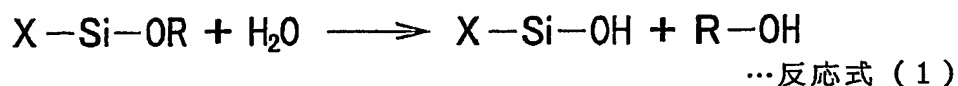
本発明に係る電気装置の製造方法に用いられる接着剤を構成する熱硬化性樹脂

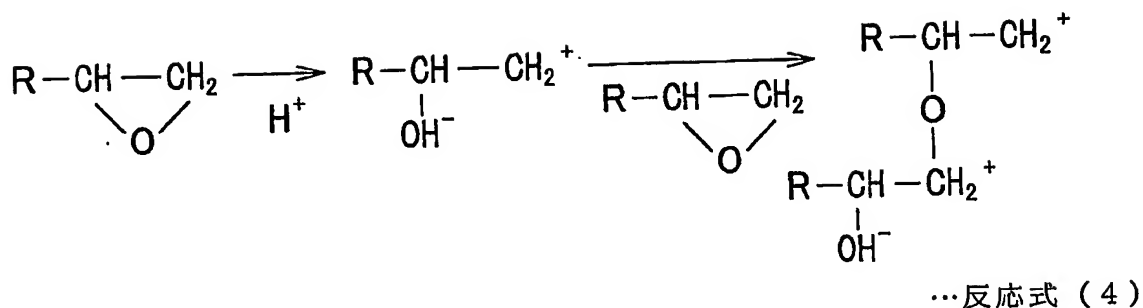
には、エポキシ樹脂が用いられる。

本発明に係る電気装置の製造方法において、第2の接合対象物上の第2の硬化剤層を第1の接合対象物上の接着剤層に押し当てると、接着剤層中の第1の硬化剤と第2の硬化剤層を構成する第2の硬化剤とが混じり合う。第1の硬化剤と第2の硬化剤が混じり合った状態で接着剤層が加熱されると、第1の硬化剤と第2の硬化剤とが反応して熱硬化性樹脂が重合する。

接着剤の粘度が高い場合や、接着剤がフィルム状に形成されている場合は、接着剤を加熱しながら第2の接合対象物を押圧すれば、接着剤が加熱によって軟化する。第2の電極と第2の硬化剤とを接着剤に押し込む工程が容易になるだけでなく、第2の硬化剤が接着剤層中に拡散されやすい。第2の硬化剤として常温で液状のものをを用いると、第2の硬化剤が接着剤層中に拡散されやすい。

第1の硬化剤及び第2の硬化剤としてそれぞれシランカップリング剤と金属キレートを用い、熱硬化性樹脂としてエポキシ樹脂を用いた場合の反応を、下記の反応式(1)～(4)に示す。





反応式 (1) 左式に示すシランカップリング剤は、ケイ素に結合するアルコキシ基 (R-O) を有している。シランカップリング剤が大気中や接着剤中の水と接触すると、アルコキシ基が加水分解されシラノールとなる (反応式 (1) 右式)。

反応式 (2) 左式に一例として、金属キレートであるアルミニウムキレートを示す。第2の硬化剤が接着剤に混じり合った状態で接着剤が加熱されると、シランカップリング剤が加水分解されてなるシラノールと、アルミニウムキレートとが加熱によって反応し、酸素原子を介してシラノールのケイ素がアルミニウムに結合する (反応式 (2) 右式)。

その状態のアルミニウムキレートに、他のシラノールが平衡反応で配位すると、反応式 (3) 右式に示すようにプレステッド酸点を生じ、活性化したプロトンが生成される。

反応式 (4) に示すように、エポキシ樹脂の末端に位置するエポキシ環が活性化したプロトンによって開環し、他のエポキシ樹脂のエポキシ環と重合する (カチオン重合)。

反応式 (2)、(3) に示す反応は、従来の接着剤が硬化する温度 (180℃以上) よりも低い温度で進行するので、本発明方法に用いられる接着剤は従来の接着剤よりも低温で、しかも短時間で硬化する。

カチオン重合反応は、連鎖的に進行するので、第2の硬化剤が接着剤層に均一に分散されない場合も接着剤層全体を硬化させることができる。

第1及び第2の硬化剤としてシランカップリング剤を用いる場合、第1及び第

2の硬化剤に水を添加すれば、硬化剤中で上記反応式(1)の反応を進行させることができるので、接着剤を硬化させる際の反応がより迅速になる。

第2の硬化剤層を配置する方法としては、例えば、第2の硬化剤を容器内に入れ、第2の接合対象物を保持機構を用いて保持し、第2の接合対象物を容器内の第2の硬化剤に浸漬することにより、工程上容易に第2の硬化剤層を形成することができる。

第2の硬化剤層の形成方法は、上述の方法に限定されるものではなく、第2の接合対象物の第1の接合対象物が接合される部分に、噴霧器を用いて第2の硬化剤を噴霧する方法や、ブラシ等を用いて第2の硬化剤を塗布する方法等がある。これらの方法を用いれば、第2の硬化剤に浸漬する方法に比べ、第2の硬化剤の使用量を減らすことができる。

第2の硬化剤として常温で固体のものを用いる場合は、有機溶剤等に分散させて塗工液とすれば、第2の硬化剤層の形成が容易になる。

本発明の更に他の目的、本発明によって得られる具体的な利点は、以下において図面を参照して説明される実施の形態及び実施例から一層明らかにされるであろう。

## 図面の簡単な説明

図1は、本発明方法に用いられる接着フィルムを構成する剥離フィルムを示す断面図である。

図2は、剥離フィルムの表面に接着剤層が形成された接着フィルムを示す断面図である。

図3は一方の接合対象物であるLCDを示す断面図であり、図4はLCDの表面に接着フィルムを配設した状態を示す断面図であり、図5はLCD上に配設した接着フィルムの剥離フィルムを剥がした状態を示す断面図である。

図6は他方の接合対象物であるTCPを示す断面図であり、図7はTCPの表面に第2の硬化剤層を形成した状態を示す断面図である。

図8は互いに接合されるLCDとTCPとを位置決めして対向させた状態を示

す断面図であり、図 9 は LCD と TCP とを突き合わせた状態を示す断面図であり、図 10 は LCD と TCP とを接合して電気装置を作製した状態を示す断面図である。

図 11 は、本発明方法の他の例を示すものであって、LCD の第 1 の電極が形成された面上に接着剤層を形成した状態を示す断面図であり、図 12 は LCD と TCP とを接合して電気装置を作製した状態を示す断面図である。

#### 発明を実施するための最良の形態

以下、本発明に係る電気装置の製造方法を図面を参照して詳細に説明する。

本発明に係る電気装置の製造方法に用いられる接着剤の製造方法を説明する。この接着剤を製造するには、まず、熱硬化性樹脂である例えばエポキシ樹脂と、第 1 の硬化剤として用いるシランカップリング剤と、導電性粒子とを混合し攪拌する。ここで得られる接着剤は、ペースト状である。このペースト状の接着剤には、金属キレートや金属アルコラートが添加されておらず、シランカップリング剤のみが添加された状態にあるので、エポキシ樹脂の重合反応が発生することがないので、接着剤は硬化することがない。

本発明に係る電気装置の製造方法に用いられる接着剤は、剥離フィルムに塗布されて取り扱われる。

上述したような工程を経て作製された接着剤は、図 1 に示すような剥離フィルム 21 の表面に所定量塗布され、その後乾燥される。剥離フィルム 21 の表面に塗布され、その後乾燥された接着材料は、図 2 に示すように、剥離フィルム 21 の表面で接着剤層 25 として形成される。接着剤層 25 中には、この接着剤層 25 を構成する接着剤中に混合された導電性粒子 27 が分散されている。

次に、上述のように剥離フィルム 21 上に接着剤層 25 を形成した接着フィルム 20 を用いて電気装置を製造する工程を説明する。

本発明方法により製造される電気装置 10 は、例えば第 1 の接合対象物である LCD (Liquid Crystal Display) 11 と第 2 の接合対象物である TCP (Tape Carrier Package) 15 とを接合して作製される。



本発明方法により製造される電気装置を構成する一方の接合対象物であるLCD 11は、図3に示すように、ガラス基板12を有し、ガラス基板12の表面に複数本の第1の電極13が形成されている。図4に示す例では、4本の第1の電極13が示されている。

LCD 11の第1の電極13が形成された面のうち、後述するTCPを接続する部分に、図4に示すように、剥離フィルム21上の接着剤層25を押し当てる。剥離フィルム21と接着剤層25との接着力は、接着剤層25と第1の電極13との接着力よりも小さいので、図5に示すように、接着剤層25をLCD 11上に残した状態で剥離フィルム21のみを剥ぎ取ることができる。

LCD 11と接合されるTCP 15は、図6に示すように、ベースフィルム16を有し、ベースフィルム16の一方の面に複数本の第2の電極17を形成している。図6に示す例では、4本の第2の電極17が示されている。

TCP 15の第2の電極17が形成された面には、図7に示すように、第2の硬化剤が塗布されて第2の硬化剤層28が形成されている。このとき、第2の電極17は、第2の硬化剤層28によって覆われた状態にある。

次に、LCD 11に対しTCP 15を接合するため、図8に示すように、第1の電極13及び第2の電極17が形成された面を面を対向させて互いに平行に配置する。このとき、LCD 11とTCP 15は、図8に示すように、複数の第1の電極13と複数の第2の電極17とがそれぞれ相対向するように位置決めされる。

次いで、TCP 15上の第2の硬化剤層28をLCD 11上の接着剤層25に押し当て、図9に示すように、第2の硬化剤層28の表面を接着剤層25の表面に密着させる。

図9に示す状態で、TCP 15をLCD 11側に押圧しながらLCD 11及びTCP 15の全体を加熱すると、接着剤層25が軟化し、第2の電極17が軟化された接着剤層25中に押し込まれる。軟化した接着剤層25は、流動性を有しているので、第2の硬化剤層28が接着剤層25に押し込まれると、第2の硬化剤層28を構成する第2の硬化剤が接着剤層25中に拡散し、第2の硬化剤と接着剤中の第1の硬化剤とが混じり合う。更に、TCP 15のLCD 11側への押

圧を続けると、第２の電極１７が更に接着剤層２５に押し込まれ、図１０に示すように、第２の電極１７と第１の電極１３との間に接着剤層２５中の導電性粒子２７が挟み込まれる。更に加熱押圧の状態を続けると、加熱によって第１の硬化剤と第２の硬化剤とが反応してエポキシ樹脂が重合し、第１の電極１３と第２の電極１７との間に導電性粒子２７を挟み込んだ状態で接着剤層２５が硬化し、ＬＣＤ１１とＴＣＰ１５とを接合する。硬化された接着剤層２５により接合されたＴＣＰ１５とＬＣＤ１１とは、図１０に示すように導電性粒子２７を介して第１及び第２の電極１３、１７との間を電氣的に接続すると共に機械的にも接続された電気装置１０を構成する。

上述の例では、剥離フィルム２１上に接着剤を塗布して接着剤層２５を形成した接着フィルム２０を用いてＬＣＤ１１とＴＣＰ１５とを接合する例を挙げて説明したが、本発明はこれに限定されるものではなく、ペースト状の接着剤を直接ＬＣＤ１１の第１の電極１３が形成された面に塗布してＴＣＰ１５をＬＣＤ１１に接合するようにしてもよい。

即ち、ペースト状の接着剤をそのまま用いる場合には、例えば、上述した図３に示すように形成された一方の接合対象物を構成するＬＣＤ１１の第１の電極１３が形成された面上に、図１１に示すように、第１の電極１３を覆って導電性粒子２７が分散されているペースト状の接着剤を塗布して接着剤層７５を形成する。

次に、図６に示すように第２の電極１７が形成された他方の接合対象物であるＴＣＰ１５をＬＣＤ１１に対向配置する。この場合にも、ＬＣＤ１１とＴＣＰ１５とは、第１及び第２の電極１３、１７が形成された面と対向させ、複数の第１の電極１３と複数の第２の電極１７とがそれぞれ相対向するように位置決めする。次いで、ＴＣＰ１５をＬＣＤ１１上に押し当て、上述した接着フィルム２０を用いた場合と同様に、ＴＣＰ１５をＬＣＤ１１側に押圧させながら加熱すると、第２の電極１７が接着剤層７５に押し込まれ、第２の電極１７と第１の電極１３との間に接着剤層７５中の導電性粒子２７が挟み込まれる。更に加熱押圧の状態を続けると、加熱によって第１の硬化剤と第２の硬化剤とが反応してエポキシ樹脂が重合し、第１の電極１３と第２の電極１７との間に導電性粒子２７を挟み込んだ状態で接着剤層２５が硬化し、図１２に示すように、ＬＣＤ１１とＴＣＰ１５

とを接合する。硬化された接着剤層 7 9 により接合された TCP 1 5 と LCD 1 1 とは、図 1 2 に示すように導電性粒子 2 7 を介して第 1 及び第 2 の電極 1 3、1 7 との間を電氣的に接続すると共に機械的にも接続された電気装置 7 0 を構成する。

次に、本発明に係る電気装置の製造方法の具体的な実施例を説明する。

#### <実施例 1>

先ず、本発明に係る電気装置の製造方法の実施例 1 を説明する。

実施例 1 においては、次に示すような接着剤を用いて LCD 1 1 と TCP 1 5 とを接合して電気装置を作成した。

ここで用いる接着剤は、第 1 の硬化剤としてエポキシシランカップリング剤（信越化学工業（株）社製の商品名「KBM-403」）を用い、このエポキシシランカップリング剤 5 重量部と、エポキシ樹脂である脂環式エポキシ樹脂セロキサイド（ダイセル化学工業（株）社製の商品名「2021P」）40 重量部と、エポキシ樹脂であるビスフェノール A 型エポキシ樹脂（油化シェルエポキシ（株）社製の商品名「EP1009」）60 重量部と、導電性粒子 10 重量部とを混合してペースト状のものを作製した。この接着剤を剥離フィルム 2 1 の表面に膜厚  $20\mu\text{m}$  の厚さで塗布して接着剤層 2 5 を形成し、接着フィルム 2 0 を作製した。この接着フィルム 2 0 に形成された接着剤層 2 5 は、上述したように、LCD 1 1 の第 1 の電極 1 3 が形成された面に被着される。

第 2 の硬化剤として金属キレートであるエチルアセトアセテートアルミニウムジイソプロピレート（川研ファインケミカル（株）社製の商品名「ALCH」）を用意した。第 2 の硬化剤は、TCP 1 5 の第 2 の電極 1 7 が形成された面に塗布されて第 2 の硬化剤層 2 8 を形成する。

上述の接着剤からなる接着剤層 2 5 が被着された LCD 1 1 と上述の第 2 の硬化剤からなる硬化剤層 2 8 が形成された TCP 1 5 を上述したような工程を経て接合して実施例 1 の電気装置 1 0 を作製した。

実施例 1 の電気装置 1 0 を構成する TCP 1 5 としては、ベースフィルム 1 6 表面に  $25\mu\text{m}$  幅の第 2 の電極 1 7 が  $25\mu\text{m}$  間隔で形成したのを用い、LCD 1 1 としては、表面積  $1\text{cm}^2$  当たりのシート抵抗を  $10\Omega$  とする ITO (Idi

um Tin Oxide) 電極 13 を形成したものをを用いた。LCD 11 と TCP 15 との接合に当たって、120℃に維持した熱圧着ヘッドを LCD 11 と TCP 15 とが重なりあった部分に 10 秒間押しつけて加熱押圧し、接着剤層 25 を 120℃まで昇温させて接合を図り電気装置 10 を作製した。

#### <実施例 2>

実施例 2 では、第 1 の硬化剤としてエポキシシランカップリング剤に代え、実施例 1 で用いた金属キレート剤を第 1 の硬化剤として用いた以外は実施例 1 と同じ条件で接着剤層 25 を形成した。

また、金属キレートに代え、実施例 1 で用いたエポキシシランカップリング剤を第 2 の硬化剤として用意した。

実施例 2 においても、接着剤を剥離フィルム 21 に塗布して接着剤層 25 とした接着フィルム 20 として用いた。

ここで得られた接着剤層 25 が被着された LCD 11 と上述の第 2 の硬化剤からなる硬化剤層 28 が形成された TCP 15 とは、上述したような実施例 1 の工程と同様の工程を経て接合されて実施例 2 の電気装置 10 が作製される。

#### <実施例 3>

実施例 3 は、次のような接着剤を用いた。この接着剤を作製するには、エポキシ樹脂であるダイセル化学工業（株）社製の商品名セロキサイド「2021P」50 重量部と、エポキシ樹脂である油化シェルエポキシ（株）社製の商品名「EP1001」50 重量部とを混合し、70℃に保温しながら攪拌混合し、ペースト状のエポキシ樹脂液を作製した。次いで、このエポキシ樹脂液 100 重量部に対し、実施例 1 で用いた第 1 の硬化剤（エポキシシランカップリング剤）5 重量部と、実施例 1 で用いた導電性粒子 10 重量部とを添加、混合し、ペースト状の接着剤を作製した。ここで得られた接着剤は、実施例 1 で用いた LCD 11 の第 1 の電極 13 が形成された面に塗布されて接着剤層 75 を形成する。

一方、上述の接着剤層 75 が形成された LCD 11 に接合される TCP 15 の第 2 の電極 17 が形成された面には、実施例 1 において用いたと同様の第 2 の硬化剤（金属キレート）を用いて第 2 の硬化剤層 28 が形成される。

上述の接着剤層 75 が形成された LCD 11 と上述の第 2 の硬化剤からなる硬

硬化剤層 28 が形成された TCP 15 とは、上述したような実施例 1 の工程と同様の工程を経て接合されて実施例 3 の電気装置 70 が作製される。

#### < 実施例 4 >

実施例 4 は、上述の実施例 3 で用いた第 2 の硬化剤（金属キレート）を第 1 の硬化剤として用い、実施例 3 で用いた第 1 の硬化剤（エポキシシランカップリング剤）を第 2 の硬化剤として用いた以外は実施例 3 と同じ条件で電気装置 70 を作製した。

#### < 比較例 1 >

次に、本発明に係る製造法によって製造された電気装置と比較するための比較例を作製した。その比較例を以下に説明する。

比較例 1 は、上述した実施例 1 に用いた接着剤を剥離フィルムに塗布してフィルム状にした接着フィルムを用いた例である。比較例 1 において用いる剥離フィルム上に形成される接着剤層は、実施例 1 において用いた接着剤 1.15 重量部に、実施例 1 で用いた第 2 の硬化剤 2 重量部を添加、混合し、第 1 及び第 2 の硬化剤の両方を有する接着剤を作成し、この接着剤を実施例 1 で用いた剥離フィルムに塗布、乾燥して接着剤層を有する接着フィルムを作製した。

この比較例 1 の接着フィルムに形成された接着剤層が被着された LCD 11 と、第 2 の硬化剤が塗布される前の TCP 15 とを上述した実施例 1 と同一の工程及び条件で接合して比較例 1 の電気装置を得た。

#### < 比較例 2 >

次に、比較例 2 を説明する。比較例 2 は、上述した実施例 3 で用いたペースト状の接着剤に、実施例 3 で用いた第 2 の硬化剤（金属キレート）2 重量部を添加、混合し、第 1 及び第 2 の硬化剤を両方含有する接着剤を用いた。比較例 2 は、この接着剤を LCD 11 の第 1 の電極 13 が形成された面に塗布して接着剤層を形成した。この接着剤層が形成された LCD 11 と第 2 の硬化剤が塗布される前の TCP 15 とを上述した実施例 1 と同一の工程及び条件で接合して比較例 2 の電気装置を得た。

ここで、上述した実施例 1、2、3、4 で得られた電気装置 10、70、比較例 1、2 で得られた電気装置のそれぞれについて下記に示す「剥離強度試験」を

行った。

〔剥離強度試験〕

引張り試験機を用い、各実施例及び各比較例において得られた電気装置の互いに接合されたTCP15をLCD11の表面に対して90°方向に引張速度50mm/分で引張り、TCP15がLCD11から剥離されときの剥離強度（単位：N/cm）を測定した。各実施例及び各比較例の剥離強度試験の測定結果を下記の表1に示す。

表1：剥離強度試験の結果

	実施例 1	実施例 2	実施例 3	実施例 4	比較例 1	比較例 2
剥離強度 (N/cm)	11.5	11.8	13.2	13.4	1.3	1.3

表1の結果から明らかなように、第1の硬化剤を有する第1の接着材料と、第2の硬化剤を有する第2の接着材料とを別々にTCP15やLCD11に被着して接合した実施例1～4では、従来よりも低温、且つ短時間（120℃、10秒間）の条件で接着剤を硬化させて接合を図ることができたのにもかかわらず、剥離強度が高く、本発明方法により製造された電気装置の接合強度の高さが確認された。

他方、第1、第2の硬化剤をそれぞれ同一の接着剤に添加した比較例1、2では、剥離強度が実用に耐えられないほど低かった。これは、第1、第2の硬化剤の反応によって接着剤作製中から接着剤の粘度が除々上昇し、TCP15とLCD11とを加熱押圧する前に、接着剤の接着性が失われたためと思われる。

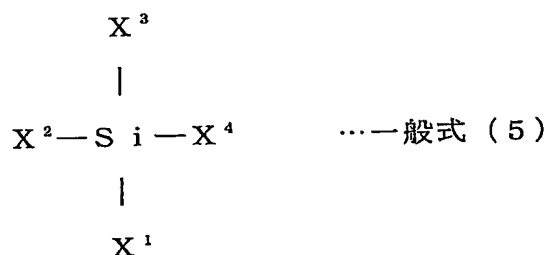
以上は、導電性粒子27を介して第1の電極13と第2の電極17を電氣的に且つ機械的に接続する場合について説明したが、本発明はこれに限定されるものではない。例えば、接着材料中に導電性粒子を添加せずに第1、第2の接着材料を作製し、加熱押圧の際に第2の電極を第1の電極に直接当接させることによって、第1及び第2の電極間の接続を行ってよい。また、導電性粒子27を用いる

場合は、第 1 及び第 2 の接着材料のいずれか一方に導電性粒子 27 が添加されていればよい。

本発明に方法において硬化剤として用いられる金属キレートや金属アルコラートとしては、ジルコニウム、チタニウム、アルミニウム等種々の中心金属を有するものを用いることができるが、これらのなかでも特に反応性の高いアルミニウムを中心金属とするアルミニウムキレート又はアルミニウムアルコラートが好ましい。

アルミニウムキレートの配位子の種類や、アルミニウムアルコラートのアルコキシ基の種類も特に限定されるものではない。例えば、アルミニウムキレートとしては、上述した実施例 1～4 に用いたエチルアセトアセテートアルミニウムジイソプロピレート以外にもアルキルアセトアセテートアルミニウムジイソプロピレート、アルミニウムモノアセチルアセトネートビス（エチルアセトアセテート）等を用いることができる。

また、シランカップリング剤としては、下記の一般式（5）に示すものを用いることが好ましい。



一般式（5）中置換基  $X^1 \sim X^4$  のうち、少なくとも一つの置換基がアルコキシ基である。また、アルコキシ基以外の置換基  $X^1 \sim X^4$  のうち、少なくとも一つの置換基がエポキシ環又はビニル基を有するものが好ましく、エポキシ環を有する置換基としてはグリシジル基が特に好ましい。

以上は接着剤に添加する熱硬化性樹脂としてエポキシ樹脂を用いる場合について説明したが、本発明はこれに限定されるものではない。カチオン重合する樹脂であれば、例えば、尿素樹脂、メラミン樹脂、フェノール樹脂、ビニルエーテル

樹脂、オキセタン樹脂等種々のものを用いることができるが、熱硬化後の接着剤の強度等を考慮するとエポキシ樹脂を用いることが好ましい。

熱硬化性樹脂以外にも、例えば、接着剤に熱可塑性樹脂を添加することができる。熱可塑性樹脂としては、例えば、フェノキシ樹脂、ポリエステル樹脂、ポリウレタン樹脂、ポリビニルアセタール、エチレンビニルアセテート、ポリブタジエンゴム等のゴム類等種々のものを用いることができる。また、本発明方法に用いられる接着剤に老化防止剤、充填剤、着色剤等の種々の添加剤を添加することもできる。

以上は、第1の接合対象物としてLCD11を用い、第2の接合対象物としてTCP15を用いる場合について説明したが、本発明はこれに限定されるものではなく、例えば、第1の接合対象物としてTCP15を、第2の接合対象物としてLCD11をそれぞれ用い、TCP15上に接着剤を配置し、LCD11上に第2の硬化剤層を配置することもできる。

また、第1及び第2の接合対象物は、LCD11やTCP15に限定されるものではなく、半導体チップやフレキシブル配線板等種々の回路基板の接続に用いることができる。

なお、本発明は、図面を参照して説明した上述の実施例に限定されるものではなく、添付の請求の範囲及びその主旨を逸脱することなく、様々な変更、置換又はその同等のものを行うことができることは当業者にとって明らかである。

#### 産業上の利用可能性

上述したように、本発明に係る電気装置の製造方法に用いる接着剤は、シランカップリング剤と金属キレートとの反応により、エポキシ樹脂がカチオン重合するので、従来の接着剤よりも低温、短時間で硬化させることができる。第2の硬化剤が、第1の硬化剤や熱硬化性樹脂とは分離されているので、接合対象物同士を接合する前に熱硬化性樹脂の重合反応が起こらず、接着剤の保存性を高めることができる。



## 請求の範囲

1. 第1の電極を有する第1の接合対象物に、前記第1の電極と接続されるべき第2の電極を有する第2の接合対象物を接合し、前記第1の接合対象物と前記第2の接合対象物とからなる電気装置を製造する製造方法であって、

少なくとも前記第1の電極上に、熱硬化性樹脂と第1の硬化剤とを有する接着剤を配置して接着剤層を形成する工程と、

少なくとも前記第2の電極上に、加熱によって前記第1の硬化剤と反応し、前記熱硬化性樹脂を重合させる第2の硬化剤を配置して第2の硬化剤層を形成する工程と、

前記第1の電極と前記第2の電極とを位置合わせする工程と、

前記第1の接合対象物上の前記接着剤と、前記第2の接合対象物上の前記第2の硬化剤とを密着させる工程と、

前記第1、第2の接合対象物を押圧し、前記第1、第2の電極を接続すると共に、加熱によって前記熱硬化性樹脂を重合させる工程とを有する電気装置の製造方法。

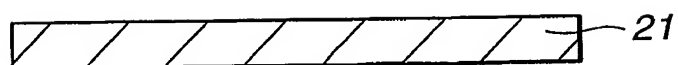
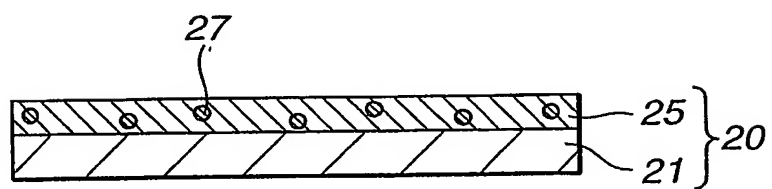
2. 前記接着剤に予め導電性粒子を添加しておき、前記第1の電極及び第2の電極を前記導電性粒子を介して接続する請求の範囲第1項記載の電気装置の製造方法。

3. 前記第1の硬化剤及び第2の硬化剤のうち、一方の硬化剤はシランカップリング剤を主成分とし、他方の硬化剤は金属キレート又は金属アルコラートのいずれか一方又は両方を主成分とする請求の範囲第1項記載の電気装置の製造方法。

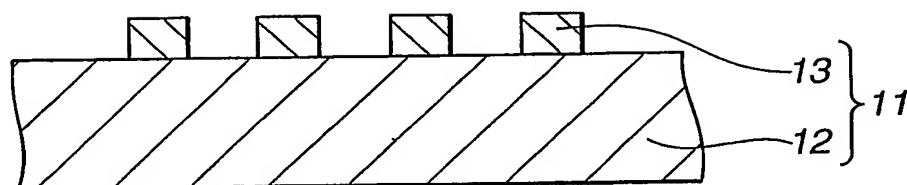
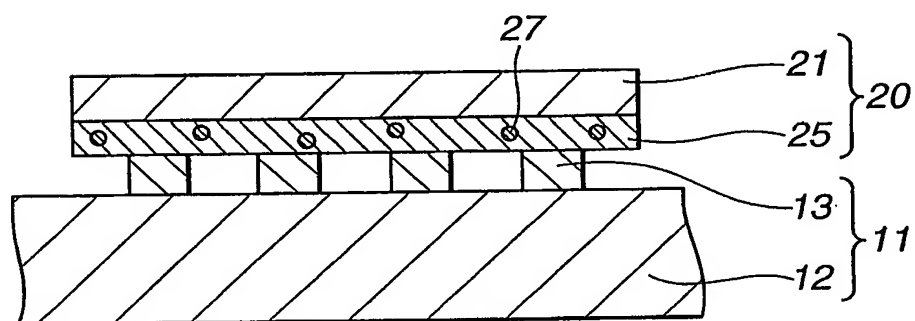
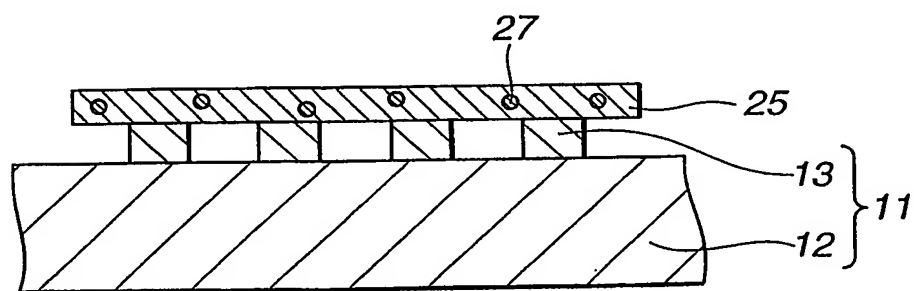
4. 前記金属キレートは、アルミニウムキレートからなる請求の範囲第3項記載の電気装置の製造方法。

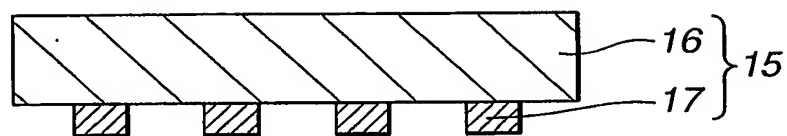
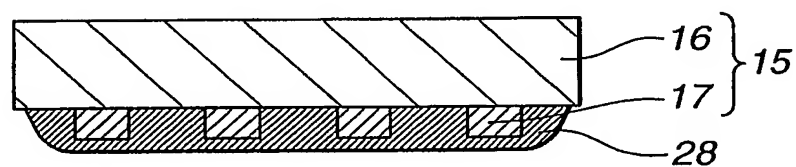
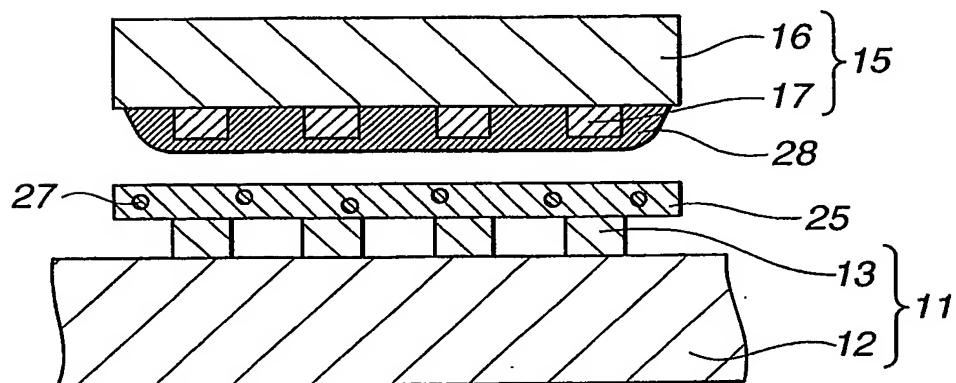
5. 前記金属アルコラートは、アルミニウムアルコラートからなる請求の範囲第3項記載の電気装置の製造方法。

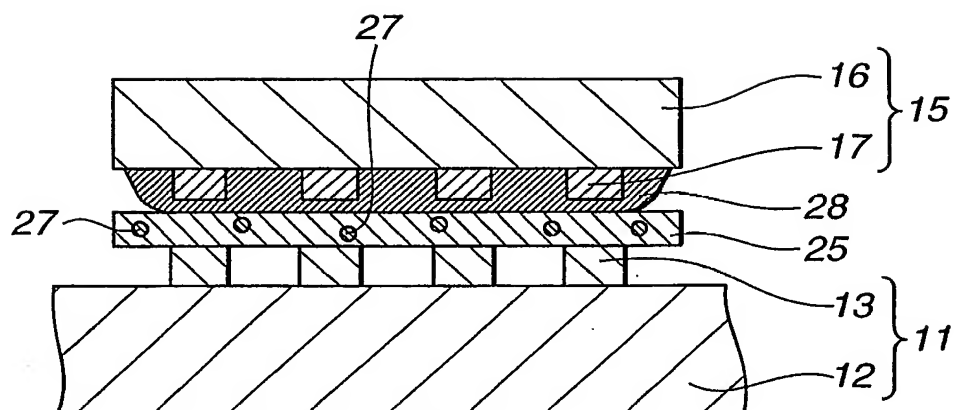
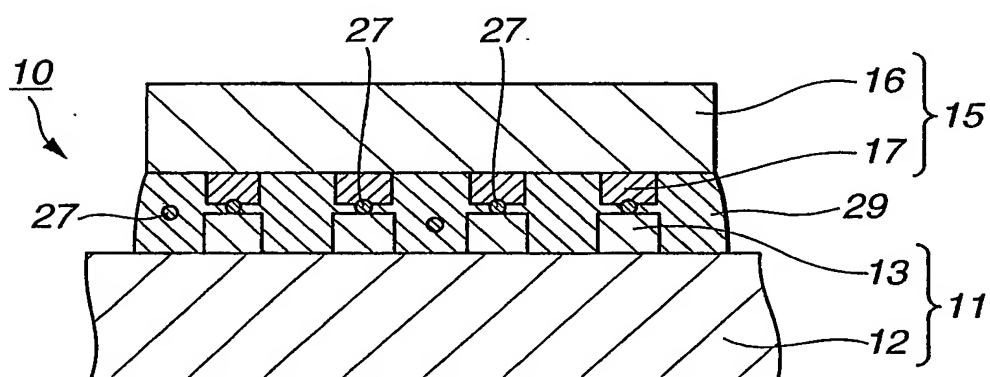
6. 前記熱硬化性樹脂は、エポキシ樹脂である請求の範囲第1項記載の電気装置の製造方法。

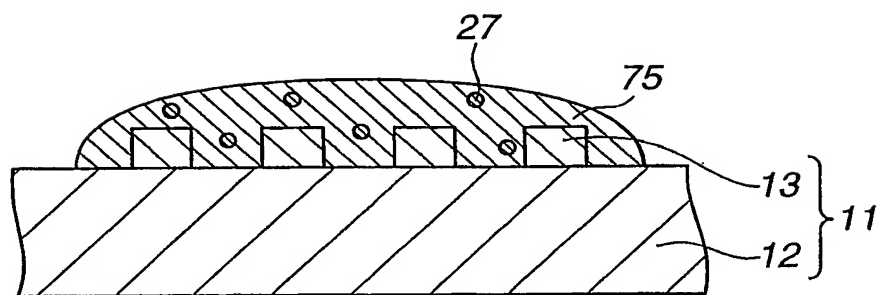
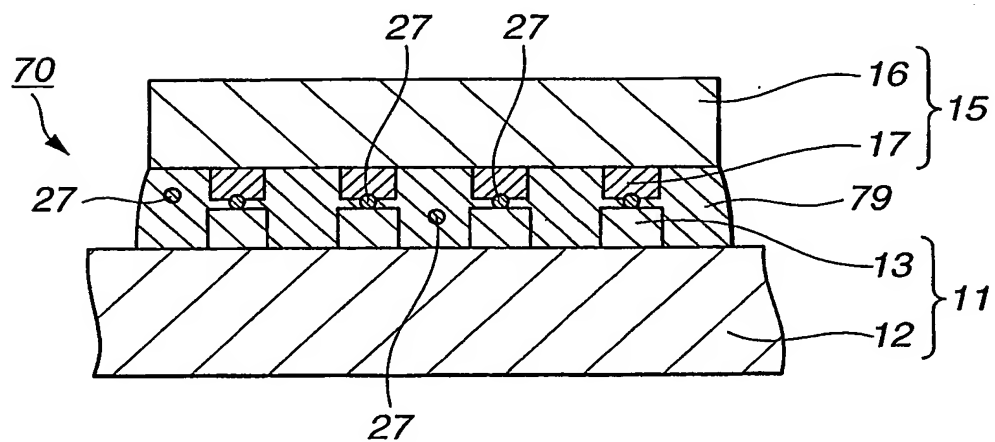
**FIG.1****FIG.2**

2/5

**FIG. 3****FIG. 4****FIG. 5**

**FIG. 6****FIG. 7****FIG. 8**

**FIG. 9****FIG. 10**

**FIG.11****FIG.12**

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP03/01591

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl<sup>7</sup> C09J5/00, H05K3/36, C09J201/00, C09J163/00

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl<sup>7</sup> C09J5/00, H05K3/36, C09J201/00, C09J163/00

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2003
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2003	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2003

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

WPI/L

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y	JP 7-82533 A (Hitachi Chemical Co., Ltd.), 28 March, 1995 (28.03.95), Claims; Par. Nos. [0013], [0016] to [0030] (Family: none)	1, 2, 6 3-5
Y	JP 7-26235 A (Toshiba Chemical Corp.), 27 January, 1995 (27.01.95), Claims (Family: none)	1-6
Y	JP 9-291260 A (Hitachi Chemical Co., Ltd.), 11 November, 1997 (11.11.97), Claims; Par. Nos. [0010] to [0024] (Family: none)	1-6

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.☐ See patent family annex.

\* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier document but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search  
10 March, 2003 (10.03.03)Date of mailing of the international search report  
25 March, 2003 (25.03.03)Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No.

PCT/JP03/01591

## C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 2001-303013 A (Ube Industries, Ltd.), 31 October, 2001 (31.10.01), Claims; Par. Nos. [0018] to [0027] (Family: none)	1-6
Y	JP 2000-230091 A (Kaneka Corp.), 22 August, 2000 (22.08.00), Claims; Par. Nos. [0025] to [0027] (Family: none)	1-6
Y	US 4954534 A (Ricoh Co., Ltd.), 04 September, 1990 (04.09.90), Claims; columns 17 to 18 & DE 3825002 A & GB 2207918 A & JP 1-29384 A & JP 1-103621 A	1-6
Y	US 4831063 A (Kabushiki Kaisha Toshiba), 16 May, 1989 (16.05.89), Claims; columns 6 to 7 & EP 135887 A1 & JP 60-71631 A	1-6



# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No.  
PCT/JP03/01591

## Box I Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 2 of first sheet)

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1. ☐ Claims Nos.:  
because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:
  
2. ☐ Claims Nos.:  
because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:
  
3. ☐ Claims Nos.:  
because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

## Box II Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 3 of first sheet)

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:

A matter common to claims 1-6 is the process described in claim 1, i.e., "a process for producing an electrical apparatus comprising two objects bonded to each other which are a first object having a first electrode and a second object having a second electrode connected to the first electrode, which comprises: a step in which an adhesive comprising a thermosetting resin and a first hardener is disposed on at least the first electrode to form an adhesive layer; a step in which a second hardener which upon heating reacts with the first hardener to polymerize the thermosetting resin is disposed on at least the second electrode to form a second hardener layer; a step in which the (continued to extra sheet)

1. ☐ As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.
2. ☒ As all searchable claims could be searched without effort justifying an additional fee, this Authority did not invite payment of any additional fee.
3. ☐ As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:
  
4. ☐ No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:

Remark on Protest ☐ The additional search fees were accompanied by the applicant's protest.  
☐ No protest accompanied the payment of additional search fees.

Continuation of Box No.II of continuation of first sheet(1)

first electrode and the second electrode are positioned; a step in which the adhesive disposed on the first object to be bonded is brought into close contact with the second hardener disposed on the second object to be bonded; and a step in which the first and second objects to be bonded are pressed against each other to connect the first electrode to the second electrode and simultaneously heating the objects to polymerize the thermosetting resin." However, a partial search revealed that the common matter neither is novel nor involves an inventive step because it is disclosed in the documents shown in the attached sheet or can be easily attained by combining the documents in a manner obvious to persons skilled in the art. Consequently, the common matter cannot be regarded as a special technical feature in the meaning of Rule 13.2 of the Regulations under the PCT.

Furthermore, any other common matter is not considered to be a special technical feature. Therefore, claims 1-6 cannot be considered to be a group of inventions so linked as to form a single general inventive concept.

## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> C09J 5/00, H05K 3/36, C09J201/00, C09J163/00

## B. 調査を行った分野

## 調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> C09J 5/00, H05K 3/36, C09J201/00, C09J163/00

## 最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1922-1996年

日本国公開実用新案公報 1971-2003年

日本国登録実用新案公報 1994-2003年

日本国実用新案登録公報 1996-2003年

## 国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

WPI/L

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X Y	JP 7-82533 A (日立化成工業株式会社) 1995. 0 3. 28, 特許請求の範囲, 段落【0013】, 段落【0016】 -【0030】 (ファミリーなし)	1, 2, 6 3-5
Y	JP 7-26235 A (東芝ケミカル株式会社) 1995. 0 1. 27, 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-6
Y	JP 9-291260 A (日立化成工業株式会社) 1997.	1-6

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)

「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&amp;」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

10.03.03

国際調査報告の発送日

25.03.02

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

橋本 栄和

4V

8620

電話番号 03-3581-1101 内線 3483

C (続き). 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
	11. 11, 特許請求の範囲, 段落【0010】－【0024】 (ファミリーなし)	
Y	JP 2001-303013 A (宇部興産株式会社) 200 1. 10. 31, 特許請求の範囲, 段落【0018】－【002 7】 (ファミリーなし)	1-6
Y	JP 2000-230091 A (鐘淵化学工業株式会社) 20 00. 08. 22, 特許請求の範囲, 段落【0025】－【002 7】 (ファミリーなし)	1-6
Y	US 4954534 A (Ricoh Company, Lt d.) 1990. 09. 04, Claims, Column 17- 18 &DE 3825002 A &GB 2207918 A &JP 1-29384 A &JP 1-103621 A	1-6
Y	US 4831063 A (Kabusiki Kaisha T oshiba) 1989. 05. 16, Claims, Colum n 6-7 &EP 135887 A1 &JP 60-71631 A	1-6

## 第Ⅰ欄 請求の範囲の一部の調査ができないときの意見（第1ページの2の続き）

法第8条第3項（PCT17条(2)(a)）の規定により、この国際調査報告は次の理由により請求の範囲の一部について作成しなかった。

1. ☐ 請求の範囲 \_\_\_\_\_ は、この国際調査機関が調査をすることを要しない対象に係るものである。つまり、
2. ☐ 請求の範囲 \_\_\_\_\_ は、有意義な国際調査をすることができる程度まで所定の要件を満たしていない国際出願の部分に係るものである。つまり、
3. ☐ 請求の範囲 \_\_\_\_\_ は、従属請求の範囲であってPCT規則6.4(a)の第2文及び第3文の規定に従って記載されていない。

## 第Ⅱ欄 発明の単一性が欠如しているときの意見（第1ページの3の続き）

次に述べるようにこの国際出願に二以上の発明があるとこの国際調査機関は認めた。

請求の範囲1-6に共通な事項は、請求の範囲1に記載された「第1の電極を有する第1の接合対象物に、前記第1の電極と接続されるべき第2の電極を有する第2の接合対象物を接合し、前記第1の接合対象物と前記第2の接合対象物とからなる電気装置を製造する製造方法であって、少なくとも前記第1の電極上に、熱硬化性樹脂と第1の硬化剤とを有する接着剤を配置して接着剤層を形成する工程と、少なくとも前記第2の電極上に、加熱によって前記第1の硬化剤と反応し、前記熱硬化性樹脂を重合させる第2の硬化剤を配置して第2の硬化剤層を形成する工程と、前記第1の電極と前記第2の電極とを位置合わせする工程と、前記第1の接合対象物上の前記接着剤と、前記第2の接合対象物上の前記第2の硬化剤とを密着させる工程と、前記第1、第2の接合対象物を押圧し、前記第1、第2の電極を接続す

1. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料をすべて期間内に納付したので、この国際調査報告は、すべての調査可能な請求の範囲について作成した。
2. ☒ 追加調査手数料を要求するまでもなく、すべての調査可能な請求の範囲について調査することができたので、追加調査手数料の納付を求めなかった。
3. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料を一部のみしか期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、手数料の納付のあった次の請求の範囲のみについて作成した。
4. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料を期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、請求の範囲の最初に記載されている発明に係る次の請求の範囲について作成した。

## 追加調査手数料の異議の申立てに関する注意

- ☐ 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがあった。
- ☐ 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがなかった。

## (第Ⅱ欄の続き)

ると共に、加熱によって前記熱硬化性樹脂を重合させる工程とを有する電気装置の製造方法」であるが、部分的調査の結果、上記共通の事項は、別紙に記載された各文献に開示されているか当該各文献の当業者に自明な組合せにより容易に発明し得るものであり、新規性ないし進歩性を有しておらず、PCT施行規則13.2における特別な技術的特徴であるとはいえない。

また、他に特別な技術的特徴となりうる共通の事項が存在するものとも認められないから、請求の範囲1-6が、単一の一般的発明概念を形成するように連関している一群の発明であると認めることができない。